

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

30. 7. 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年 7月14日  
Date of Application:

REC'D 19 AUG 2004

出願番号 特願2003-274161  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP 2003-274161]

WIPO PCT

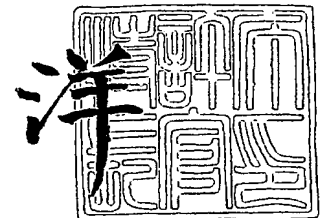
出願人 三菱レイヨン株式会社  
Applicant(s):

PRIORITY  
DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1 (a) OR (b)

2004年 7月23日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 P021757  
【提出日】 平成15年 7月14日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 C07C 27/00  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社大竹事業  
    所内  
    【氏名】 加峯 靖弘  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社大竹事業  
    所内  
    【氏名】 安藤 佳正  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社大竹事業  
    所内  
    【氏名】 谷口 芳行  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000006035  
    【氏名又は名称】 三菱レイヨン株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100123788  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 宮崎 昭夫  
    【電話番号】 03-3585-1882  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100088328  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 金田 暢之  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100106297  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 伊藤 克博  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100106138  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 石橋 政幸  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 201087  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1

**【書類名】特許請求の範囲****【請求項 1】**

少なくとも被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し、接触気相酸化反応器に供給する、接触気相酸化反応の反応ガス供給方法において、

接触気相酸化反応器の入り口ガスの組成を、該入り口ガス中の被酸化原料の濃度と酸素の濃度をプロットして表される組成 A 点 [被酸化原料の濃度  $R(a)$ 、酸素の濃度  $O(a)$ ] から、組成 B 点 [被酸化原料の濃度  $R(b)$ 、酸素の濃度  $O(b)$ ] に変更する際に [ただし、組成 A 点および組成 B 点は被酸化原料と酸素が反応により爆発する可能性がある範囲 (爆発範囲) 外の組成であり、かつ  $R(a) \neq R(b)$ 、 $O(a) \neq O(b)$  である。]、

組成 A 点から組成 B 点への変更の際の途中の組成が爆発範囲外となるように、被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量を調整することを特徴とする接触気相酸化反応の反応ガス供給方法。

**【請求項 2】**

組成 A 点から組成 B 点への変更の際の途中の組成が爆発範囲外となるように、被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量のうち、爆発範囲から離れる方向に増減する方の供給量を先に増減し、次いで他方の供給量を増減する請求項 1 記載の反応ガス供給方法。

**【請求項 3】**

爆発範囲のうち、最も低い爆発限界酸素濃度の組成 C 点 [被酸化原料の濃度  $R(c)$ 、酸素の濃度  $O(c)$ 、ただし、 $O(c) < O(a)$ 、 $O(c) < O(b)$  であり、かつ  $R(b) > R(c) > R(a)$ 、または、 $R(a) > R(c) > R(b)$  である。] が存在する場合、

組成 A 点から組成 B 点への変更の際の途中で、組成 C' 点 [被酸化原料の濃度  $R(c')$ 、酸素の濃度  $O(c')$ 、ただし  $R(c') = R(c)$ 、 $O(c') < O(c)$  である。] を通るように被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量を調整する請求項 1 記載の反応ガス供給方法。

**【請求項 4】**

被酸化原料と酸素が反応により爆発する可能性がある範囲 (爆発範囲) と、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料の濃度と酸素の濃度をプロットして表される現時点の組成点とをディスプレイ上に表示して監視する請求項 1～3 の何れか一項記載の反応ガス供給方法。

**【請求項 5】**

被酸化原料が、イソブチレン、第 3 級ブチルアルコールまたはメタクロレインである請求項 1～4 の何れか一項記載の反応ガス供給方法。

**【請求項 6】**

コンピューターを、少なくとも被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合した場合に反応により爆発する可能性がある組成の範囲 (爆発範囲) をディスプレイに表示する手段と、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料の濃度の測定値と酸素の濃度の測定値とをプロットして表される組成点を前記爆発範囲と共に前記ディスプレイに表示する手段として機能させるためのプログラム。

【書類名】明細書

【発明の名称】接触気相酸化反応の反応ガス供給方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し、接触気相酸化反応器に供給して接触気相酸化反応させる方法において、接触気相酸化反応器入り口ガスの組成を変更する場合、安全に、且つ、製造プロセスの能力を最大限に引き出すことが可能な反応ガス供給方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来より、被酸化原料と分子状酸素含有ガスを混合し、その混合ガスを反応器に供給して接触気相酸化反応を行なう方法が知られている。例えば、イソブチレンと酸素を反応させてメタクロレインを製造する方法や、メタクロレインと酸素を反応させてメタクリル酸を製造する方法がある（特許文献1参照）。

【0003】

被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し接触気相酸化反応を行う場合、大部分のものは被酸化原料と分子状酸素の組み合わせの組成の範囲内において、特有の爆発範囲が存在する。ここで、爆発範囲とは、被酸化原料と酸素が反応により爆発する可能性がある組成の範囲を意味する。なお、爆発範囲は燃焼範囲とも呼ばれる。

【0004】

一方、例えばイソブチレンやメタクロレインを被酸化原料とし、メタクロレインやメタクリル酸を製造する接触気相酸化反応の場合、触媒に還元雰囲気を与えないことが触媒寿命の観点から重要なので、接触気相酸化反応器の入り口ガスの組成は爆発範囲の外ではあるが近くであることが多い。

【0005】

そして、従来技術においては、変更しない固定点としての濃度組成に関しては安全性を考慮して設定されているものの、操作を継続しながら必要に応じて特に濃度組成を変更しようとする場合、その変更途中の組成に関しても安全性を確保する方法については何ら明らかにされていない。

【特許文献1】特開2002-356450号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、爆発範囲の近くの組成で反応させる場合にあって、安全に、且つ、製造プロセスの能力を最大限に引き出す様な組成条件の変更が可能となる、接触気相酸化反応の反応ガス供給方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明は、少なくとも被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し、接触気相酸化反応器に供給する、接触気相酸化反応の反応ガス供給方法において、接触気相酸化反応器の入り口ガスの組成を、該入り口ガス中の被酸化原料の濃度と酸素の濃度をプロットして表される組成A点〔被酸化原料の濃度 $R(a)$ 、酸素の濃度 $O(a)$ 〕から、組成B点〔被酸化原料の濃度 $R(b)$ 、酸素の濃度 $O(b)$ 〕に変更する際に〔ただし、組成A点および組成B点は被酸化原料と酸素が反応により爆発する可能性がある範囲（爆発範囲）外の組成であり、かつ $R(a) \neq R(b)$ 、 $O(a) \neq O(b)$ である。〕、組成A点から組成B点への変更の際の途中の組成が爆発範囲外となるように、被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量を調整することを特徴とする接触気相酸化反応の反応ガス供給方法である。

【発明の効果】

【0008】

本発明においては、入り口ガスの組成を、最初の組成A点から目的組成B点に変更する際に、プロット上の最短距離（すなわちプロット上のA点とB点を結ぶ直線）で変更するのではなく、途中の組成が爆発範囲外となるよう、特に爆発範囲に組成が近づかないよう迂回して変更すべく、それらの供給量を調整する。これにより、安全に反応条件を変更でき、且つ、製造プロセスの能力を最大限に引き出すことができる。すなわち本発明によれば、爆発範囲の近くの組成で反応させる場合にあっても、安全に、且つ、製造プロセスの能力を最大限に引き出す様な、安全な組成条件の変更が可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0009】

少なくとも被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し、接触気相酸化反応器に供給する接触気相酸化反応の反応ガス供給方法において、接触気相酸化反応における反応組成の変更は、運転負荷の増減に伴い発生する。

【0010】

接触気相酸化反応器を使用する製造プロセスは、通常は、反応生成物の捕集工程を有する。したがって、一般的には、目的の接触気相酸化反応器入り口ガスの組成を得るために、その捕集工程からの排出ガスを接触気相酸化反応器入り口ガスの一部として供給する。また、この排出ガスを用いるほかにも、不活性ガスである窒素や水蒸気、もしくはその排出ガスを燃焼した後に得られるガスを投入し、目的の入り口ガスの組成を得ることもできる。

【0011】

これらガスの供給量は、プロセスを通過するガスの総量に対する割合が大きい場合が多い。したがって、このような製造プロセスにおいて同じ規模の設備でより大きな製造能力（高生産性）を出すために、接触気相酸化反応器の入り口ガスの組成を一定として、被酸化原料と酸素の気相酸化反応器への投入量を増やすことは、得策ではない。なぜならば、接触気相酸化反応器入り口ガスの組成を一定とするためには、前述した捕集工程からの排出ガス等の投入量をも増やすことになり、結果として接触気相酸化反応器を含む製造プロセス全体を通過する総ガス量が必要以上に増大し、能力限界を早めに迎えてしまうからである。

【0012】

このため、被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し、接触気相酸化反応器に供給する反応において、通常、反応器に対する運転負荷（生産性）の増減は、入り口ガスの組成を変更することになり、その組成変更は効率的で経済的な製造プロセスの運営のために必要なことで、安全に行わなければならない。本発明は、このような場合において非常に有用な方法である。

【0013】

本発明は、被酸化原料と酸素が爆発範囲を持つ反応に一般的に適用可能である。特に、被酸化原料がイソブチレン、第3級ブチルアルコール、メタクロレインである場合に適用するのが有用である。本発明においては、接触気相酸化反応容器に導入する直前のガス組成を変更する際に、この被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量を爆発範囲を考慮しながら調整する。

【0014】

特に本発明においては、組成A点から組成B点への変更の際の途中の組成が爆発範囲外となるように、被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量のうち、爆発範囲から離れる方向に増減する方の供給量を先に増減し、次いで他方の供給量を増減することが好ましい。以下、図1および図2を用いて、この好適な実施形態について説明する。

【0015】

図1は、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。図中、縦軸は入り口ガス中の酸素濃度（％）を表し、横軸は入り口ガス中の被酸化原料濃度（％）を表す。曲線の上側範囲として示す爆発範囲は、被酸化原料と酸素の組成比率がその範囲に入ると爆発の可能性を示す範囲である。被酸化原料

と酸素から接触気相酸化反応により製品を合成するような場合は、この範囲を避けて反応器入り口ガスの組成を決める。

#### 【0016】

先に述べたように、特に、イソブチレン、第3級ブチルアルコールやメタクロレイン等を被酸化原料とし、メタクロレインやメタクリル酸を製造する接触気相酸化反応の場合、触媒に還元雰囲気を与えないことが触媒寿命の観点から重要なので、接触気相酸化反応器の入り口ガスの組成は爆発範囲の外ではあるが、近くであることが多い。例えば、イソブチレンと酸素から接触気相酸化によりメタクロレインを合成する場合、図1中のAの点の様に爆発範囲の外ではあるが、近くで通常負荷の運転をする。

#### 【0017】

通常負荷（通常の生産性）での運転の場合、図1中、A点で表現されるような入り口ガス組成で運転される。次に、通常負荷以上の運転が必要となった場合、図1中のB点の方向に、すなわち、入り口ガス中の被酸化原料および酸素の濃度が大きくなる方向に、運転負荷を上げていく。A点からB点への入り口ガス組成の変更は一般的には点線のような道筋を通る場合が多いが、このようなやり方では必要以上に爆発範囲に近づき、計器の狂い等の様々なプロセスの条件の変動の影響で、爆発範囲に入ってしまうようなことも考えられ、安全な方法とは言い難い。また実際上も、この道筋を通すことは、酸素源である酸素ガスもしくは空気等（分子状酸素含有ガス）の供給量と、被酸化原料の供給量を同時に変化（増加）させることになり、この点線上を爆発範囲側に近づかないように条件変更を行うのは難しい。

#### 【0018】

そこで、図1に示す例においては、まず、A点から、被酸化原料と酸素ガスもしくは酸素を含む空気の供給量の内、被酸化原料の供給量のみを増加し、入り口ガス組成をb点に移動させる。このb点において、被酸化原料濃度は当然A点よりも増加するが、酸素濃度の方はA点よりも若干減少しており、A点からb点へ向かう実線は傾いている。これは、被酸化原料の供給量を増加した結果、入り口ガス全体からみた酸素の割合が相対的に低くなったからである。この後、b点から、被酸化原料と酸素ガスもしくは空気の供給量の内、酸素ガスもしくは空気の供給量のみを増加し、入り口ガス組成を目的のB点に移動させる。ここで、b点からB点へ向かう実線が傾いているのは、前述の理由と同様に、酸素ガスもしくは空気の供給量を増加した結果、入り口ガス全体からみた被酸化原料の割合が相対的に低くなったからである。以上のような手法により、点線で表される組成の変更の経路に比べ、危険性は減少し、安全な入り口ガス組成の変更が可能となる。

#### 【0019】

次に、運転負荷の減少が必要になった場合の例を、図2を用いて説明する。図2は、図1と同様に、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。この例においては、図2中のA点からB点の方に組成を変更することが、運転負荷を下げていくことに相当する。A点からB点への入り口ガス組成の変更は一般的には点線のような道筋を通る場合が多いが、このようなやり方では前述したように必要以上に爆発範囲に近づいてしまう。そこで、図2に示す例においては、まず、A点から、被酸化原料と酸素ガスもしくは酸素を含む空気の供給量の内、酸素ガスもしくは空気の供給量のみを減少し、入り口ガス組成をb点に移動させる。この後、b点から、被酸化原料と酸素ガスもしくは空気の供給量の内、被酸化原料の供給量のみを減少し、入り口ガス組成を目的のB点に移動させる。以上のような手法により、点線で表される組成の変更の経路に比べ、危険性は減少し、安全な入り口組成の変更が可能となる。なお、A点からb点へ向かう実線およびb点からB点へ向かう実線が傾いている理由は、図1の場合と同様である。

#### 【0020】

次に、最も低い爆発限界酸素濃度に該当する被酸化原料濃度が存在する場合、その被酸化原料濃度を越えての組成の変更を除く例について説明する。例えば、イソブチレンやメタクロレインを被酸化原料とした場合、少なくとも被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを

混合して接触気相酸化反応器に供給する接触気相酸化反応において、一般的に、爆発範囲は、最も低い爆発限界酸素濃度を有する。

#### 【0021】

図3は、図1や図2と同様に、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。本発明で言う「最も低い爆発限界酸素濃度」に相当する被酸化原料濃度とはC点のような組成点のことを言う。例えば、このC点の様な組成点を超えて、A点からB点へ組成を直接変更しようとする、爆発範囲を避けることが出来ない。このような場合、最も低い爆発限界酸素濃度に相当する被酸化原料濃度で、且つ、最も低い爆発限界酸素濃度よりわずかに低い酸素濃度を組成とするC'点のような爆発範囲外の点の中継点として採用する。この点を利用し、まずA点からC'点への組成変更を上述の手法に乗っ取って行い、次にC'点からB点への組成変更を同様に上述の手法に乗っ取って行うことにより、安全な組成の変更が可能となる。

#### 【0022】

このような図3に示した例は、要するに最も低い爆発限界酸素濃度の組成C点〔被酸化原料の濃度 $R(c)$ 、酸素の濃度 $O(c)$ 、ただし、 $O(c) < O(a)$ 、 $O(c) < O(b)$ であり、かつ $R(b) > R(c) > R(a)$ 、または、 $R(a) > R(c) > R(b)$ である。〕が存在する場合、組成A点から組成B点への変更の際の途中で組成C'点〔被酸化原料の濃度 $R(c')$ 、酸素の濃度 $O(c')$ 、ただし $R(c') = R(c)$ 、 $O(c') < O(c)$ である。〕を通るように被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量を調整する例である。本発明においては、このような実施形態も好ましい。

#### 【0023】

次に、本発明においてより高い生産性を達成することを主眼とした態様を、図4を用いて説明する。この図4は図1～図3と同様に、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。図4中のD点は、標準の生産性すなわち通常負荷での操作時における反応器入口ガス組成を示している。またE点は、より高い生産性で操作するときの入口ガス組成を示している。またe点は、前述した図1の態様と同様の中継点を示している。さらに、D点およびE点の周りの点線で示した円は、実際の操業設備や運転状態で変動し得る組成範囲を定性的に示している。この円の半径の大きさは、制御系統の精度や実際の組成を監視する計器や分析機器の精度により決定される。

#### 【0024】

上述した接触気相酸化反応においては、酸化反応に使用する触媒の寿命の観点等から、原料ガス組成変更にあたり還元性雰囲気にならぬよう操作する必要がある。還元性雰囲気を避ける為には、原料ガス中の酸素と被酸化原料のモル比を維持することが求められる。このモル比は、図4においては直線DEの勾配に相当する。そして、図4に示すように直線DEの延長線は、爆発範囲に入る。

#### 【0025】

実際の操業では、点線で示した円の範囲で組成が振れることを配慮する必要があり、両濃度を増加させていく際のE点の上限は、そのE点の周りの点線で示した円が爆発範囲に接する点となる。一方、この円の半径は、制御系統の精度や実際の組成を監視する計器や分析機器の精度により小さくすることができる。特に本発明においては、反応ガス入り口組成をディスプレイ(CRT)により常時監視し、望ましくは異常接近時に自動停止機構と連動させておく方法等により、その円の半径を小さくでき、その結果、更に高濃度であるE'点の組成を安全に採用でき、より高い生産性を達成することができる。すなわち、本発明においては、爆発範囲と現時点の組成点を図1～4の如くディスプレイ上に表示して、爆発範囲と組成点の関係を常時監視することが、高い生産性を達成する点において非常に好ましい態様である。

#### 【0026】

このような態様は、コンピューターを、特に、爆発範囲をディスプレイに表示する手段と、接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料の濃度の測定値と酸素の濃度の測定値とをプロットして表される組成点を爆発範囲と共にディスプレイに表示する手段として

機能させるプログラムを使用することにより、好適に実施できる。

#### 【0027】

図5は、このようなプログラムを使用したコンピューターの処理動作を示すフローチャートである。まず、使用する特定被酸化原料と酸素の爆発範囲のデータに基づき、その爆発範囲をディスプレイ上に表示する(501)。ここで、爆発範囲のデータは使用者が新たに入力するデータであってもよいし、既知データとして予めプログラムまたはコンピューターのメモリに格納されたデータであってもよい。次いで、接触気相酸化反応器の入り口ガスにおける被酸化原料の濃度(R)と酸素の濃度(O<sub>2</sub>)の測定手段より、逐次、現時点の測定値(R, O<sub>2</sub>)を受信する(502)。そして、その測定値(R, O<sub>2</sub>)の座標を求め(503)、現時点での組成点を、上述の爆発範囲と共にディスプレイ上に表示する(504)。このディスプレイ表示は、接触気相酸化反応の操作の終了まで継続する(505)。

#### 【0028】

以上、本発明の各実施形態について説明したが、本発明はこれらに限定されるものではない。例えば、以上の各実施形態においては、被酸化原料と分子状酸素含有ガスの供給量を別々に増減させる例を説明したが、爆発範囲外となるように調整できるのであれば、両方を一緒に変動させてもよい。

#### 【0029】

また例えば、以上の各実施形態においては、組成A点から組成B点への単純な変更のみについて説明したが、大きな条件変更を行う必要が有る場合は、上述したような各実施形態の手法を複数回繰返し行うこともできる。すなわち、例えば図1に示した方法を三回繰り返すこと、すなわち図6に示すようにb1、b2、b3の三つの中継点を経て、目的とするB点へ至らしめることも可能である。

#### 【実施例】

##### 【0030】

以下、実施例により、本発明を更に詳細に説明する。

##### 【0031】

###### <実施例1>

まず、実験設備を使用して、イソブチレンと酸素を種々の組成比率で混合し、爆発する組成点および爆発しない組成点の実験データを採用した。この実験データを前記プログラムをインストールしたコンピューターに入力し、イソブチレンと酸素についての爆発範囲をディスプレイ上に表示できるように設定した。

##### 【0032】

次いで、イソブチレンと酸素を反応させてメタクロレインを製造する製造プロセスにおいて、酸化反応器入り口ガスの組成を調整するための希釈用ガスとして捕集工程からの排出ガスを使用し、図7に示すように、それぞれ、イソブチレン濃度3.5 vol%、酸素濃度11 vol%に調整した(A点)。この状態から、希釈用ガス流量を変えず、運転負荷を、イソブチレン濃度4.5 vol%、酸素濃度12 vol%に変更した(B点)。この変更の際には、ディスプレイ上に図7に示すような爆発範囲と組成点のグラフを表示して監視しながら、最初にイソブチレン供給量を増加してイソブチレン濃度5.09 vol%、酸素濃度10.82 vol%(b点)まで変更し、次に空気供給量を増加してイソブチレン濃度4.5 vol%、酸素濃度12 vol%にして目的の負荷変更を行った。この負荷の変更は安全に行われ、図7中に示すように、爆発範囲に近づくことはなかった。

##### 【0033】

###### <実施例2>

まず、実験設備を使用して、メタクロレインと酸素を種々の組成比率で混合し、爆発する組成点および爆発しない組成点の実験データを採用した。この実験データを前記プログラムをインストールしたコンピューターに入力し、メタクロレインと酸素についての爆発範囲をディスプレイ上に表示できるように設定した。

##### 【0034】



次いで、メタクロレインと酸素を反応させてメタクリル酸を製造する製造プロセスにおいて、酸化反応器入り口ガスの組成を調整するための希釈用ガスとして捕集工程からの排出ガスを使用し、図 8 に示すように、それぞれ、メタクロレイン濃度 3.5 vol%、酸素濃度 9.65 vol% に調整した (A 点)。この状態から、希釈用ガス流量を変えず、運転負荷を、メタクロレイン濃度 3 vol%、酸素濃度 9.23 vol% に変更した (B 点)。この変更の際には、ディスプレイ上に図 8 に示すような爆発範囲と組成点のグラフを表示して監視しながら、最初に空気供給量を減少してメタクロレイン濃度 3.65 vol%、酸素濃度 9.17 vol% (b 点) まで変更し、次にメタクロレイン供給量を減少しメタクロレイン濃度 3 vol%、酸素濃度 9.23 vol% にして目的の負荷変更を行った。この負荷の変更は安全に行われ、図 8 中に示すように、爆発範囲に近づくことはなかった。

#### 【0035】

##### <比較例 1>

実施例 1 と同様の製造プロセスにおいて、それぞれ、イソブチレン濃度 3.5 vol%、酸素濃度 11 vol% に調整した (A 点)。この状態から、希釈用ガス流量を変えず、イソブチレン供給量と空気供給量を同時に増加して、図 7 中の点線に沿うように、イソブチレン濃度 4.5 vol%、酸素濃度 12 vol% (B 点) に組成を変更しようとした。しかし、組成変更の途中、X 点付近で、組成が爆発範囲に入りそうになったので以降の作業を中止した。

#### 【0036】

##### <比較例 2>

実施例 2 と同様の製造プロセスにおいて、それぞれ、メタクロレイン濃度 3.5 vol%、酸素濃度 9.65 vol% に調整した (A 点)。この状態から、希釈用ガス流量を変えず、メタクロレイン供給量と空気供給量を同時に減少して、図 8 中の点線に沿うように、メタクロレイン濃度 3 vol%、酸素濃度 9.23 vol% (B 点) に組成を変更しようとした。しかし、組成変更の途中、Y 点付近で、空気供給量のふれが起こり、組成が爆発範囲に入りそうになったので以降の作業を中止した。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0037】

【図 1】 接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

【図 2】 接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

【図 3】 接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

【図 4】 接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

【図 5】 特定のプログラムを使用したコンピューターの処理動作を示すフローチャートである。

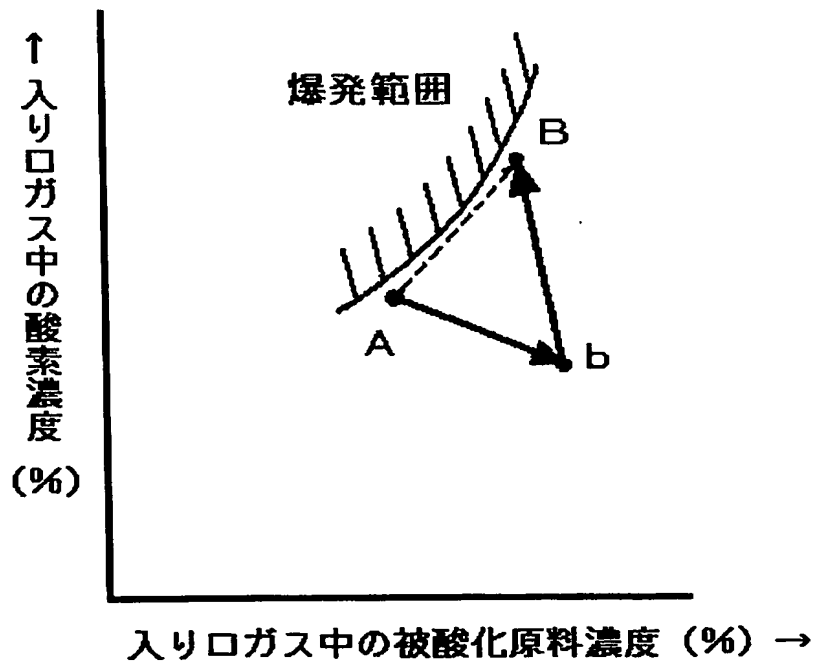
【図 6】 接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

【図 7】 実施例 1 (および比較例 1) における接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

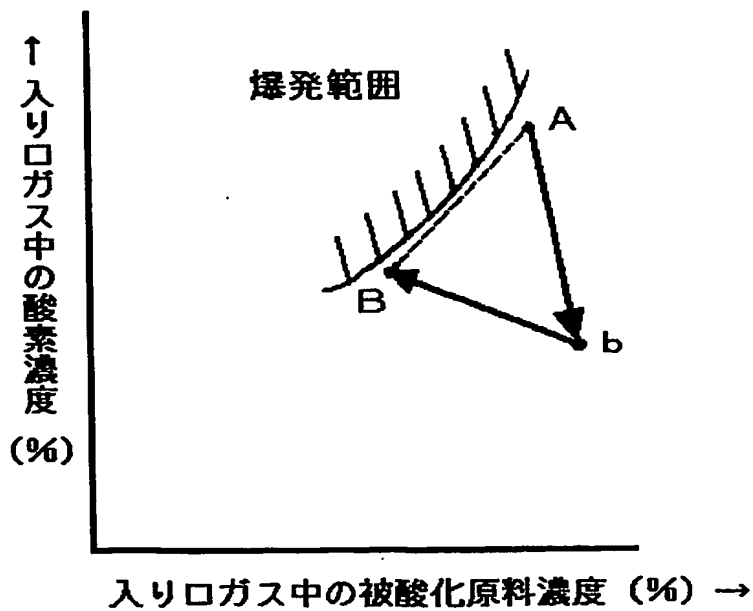
【図 8】 実施例 2 (および比較例 2) における接触気相酸化反応器の入り口ガス中の被酸化原料と酸素の組成をプロットしたグラフである。

【書類名】 図面

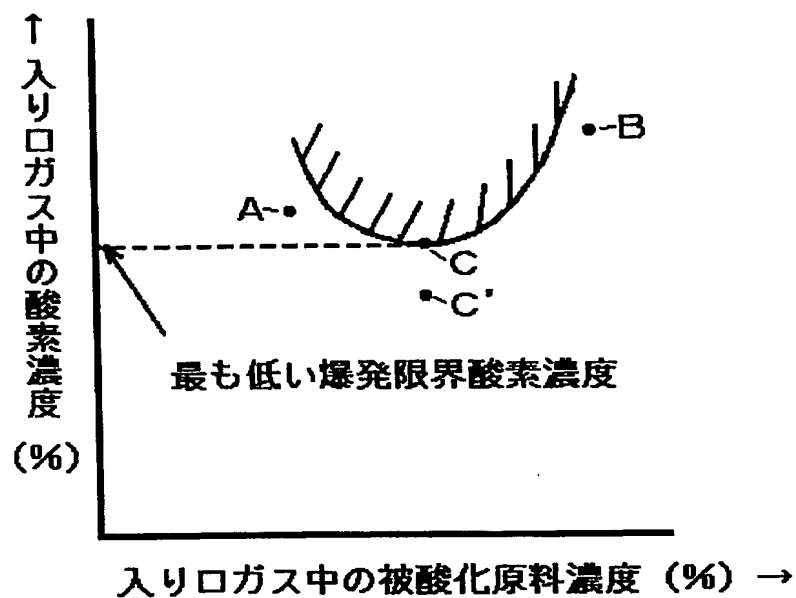
【図 1】



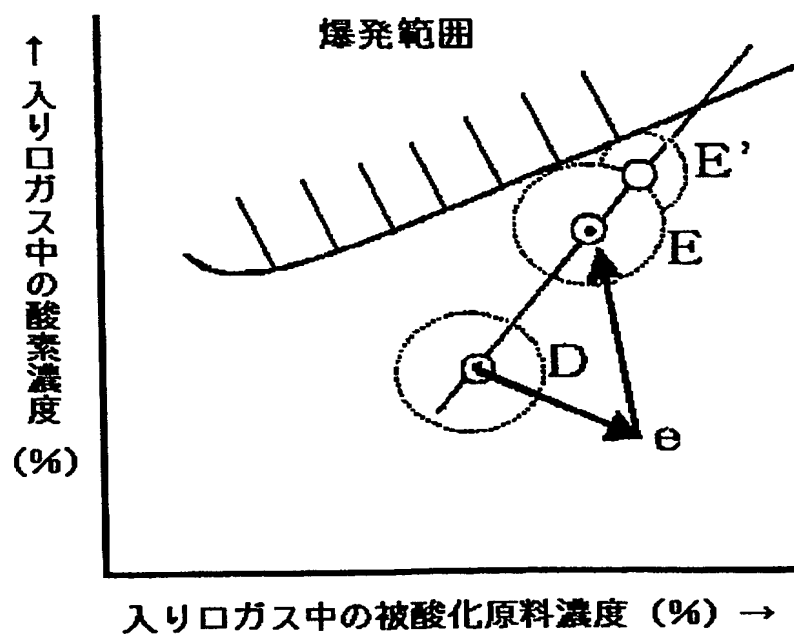
【図 2】



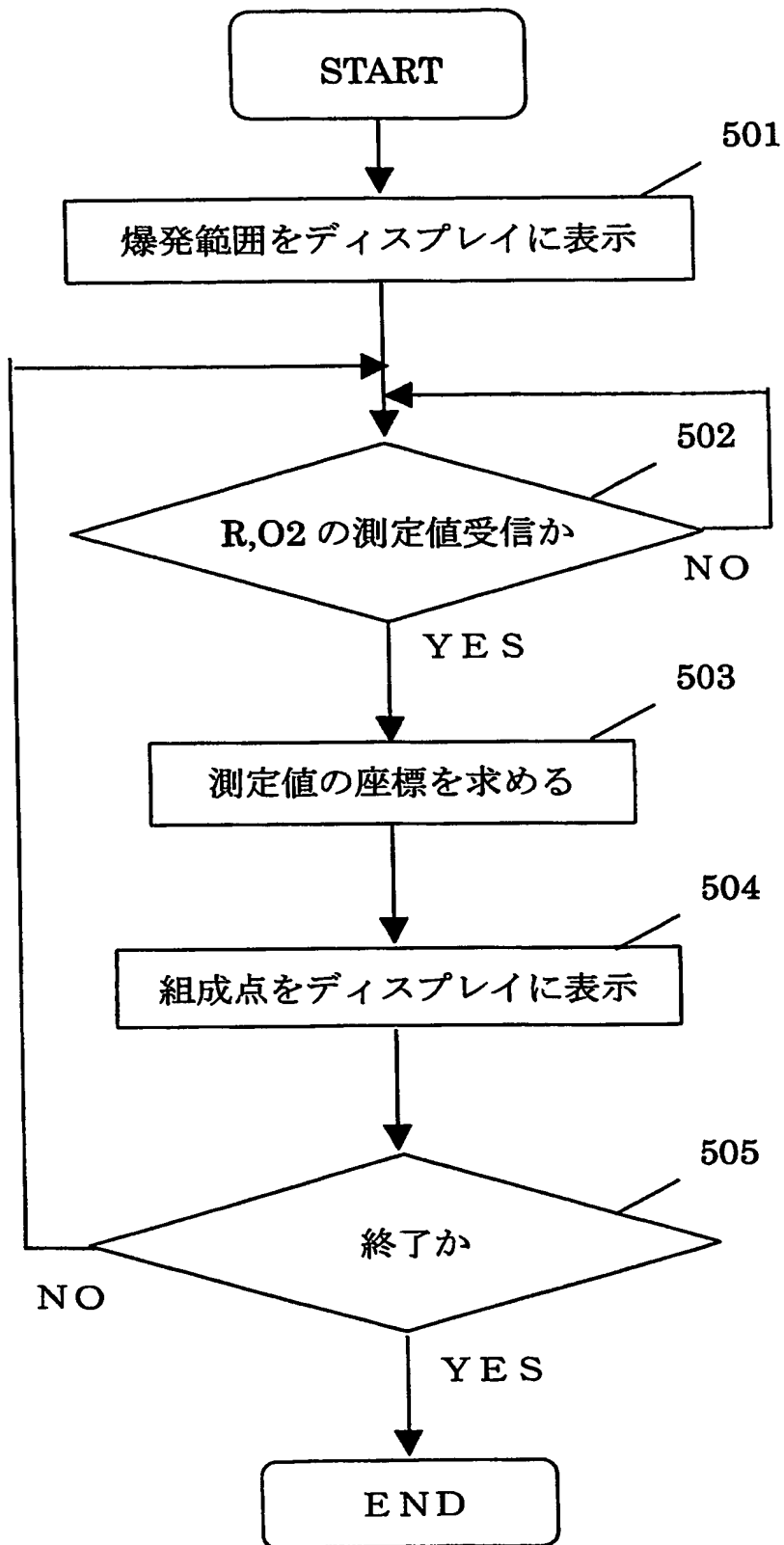
【図3】



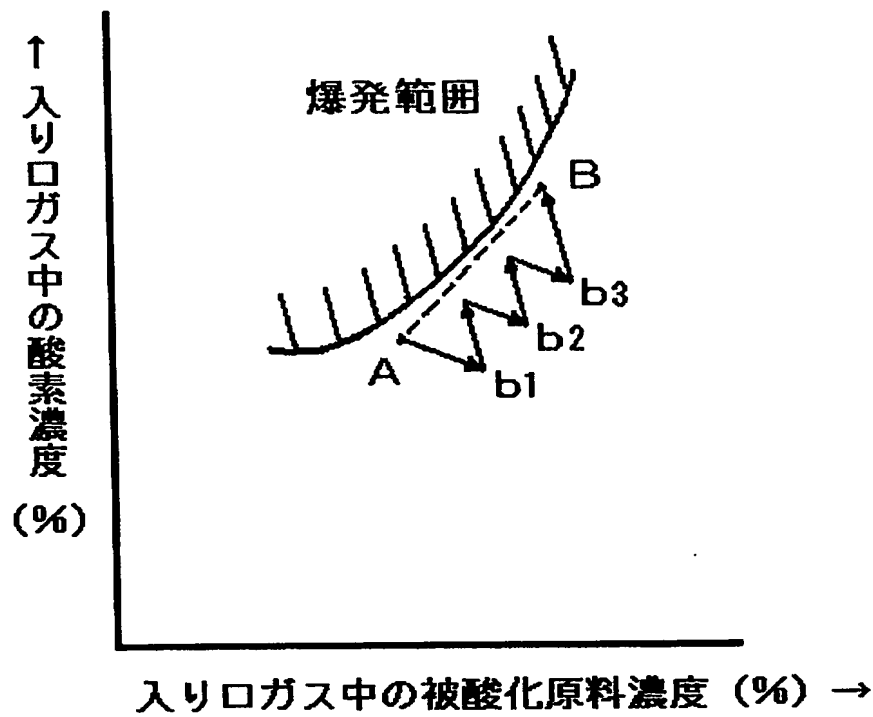
【図4】



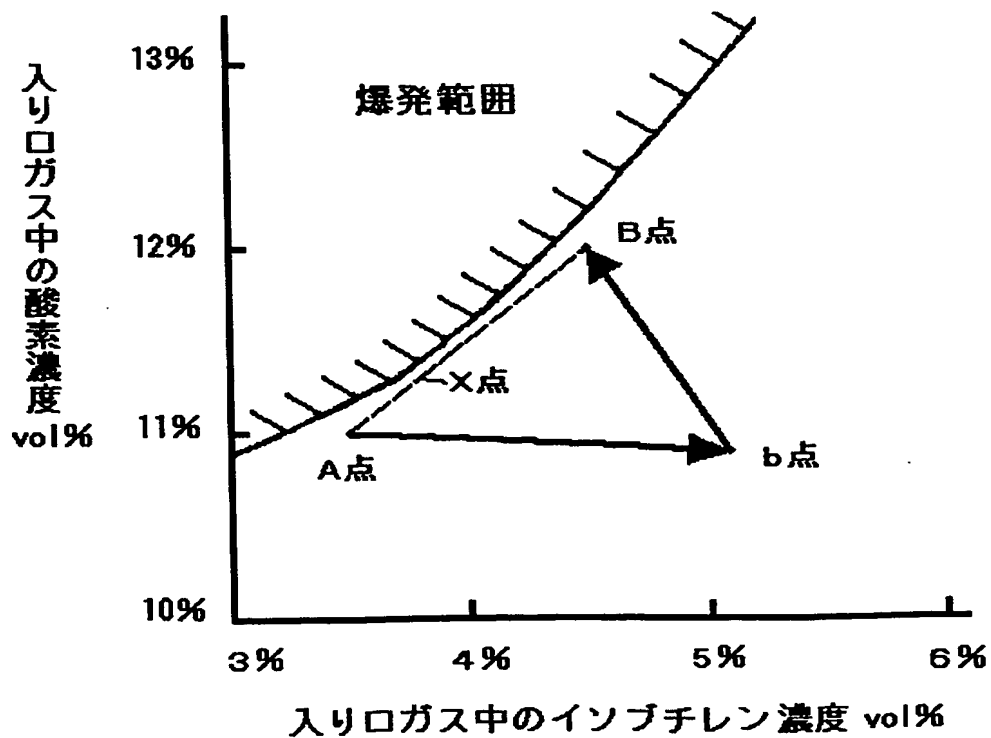
【図 5】



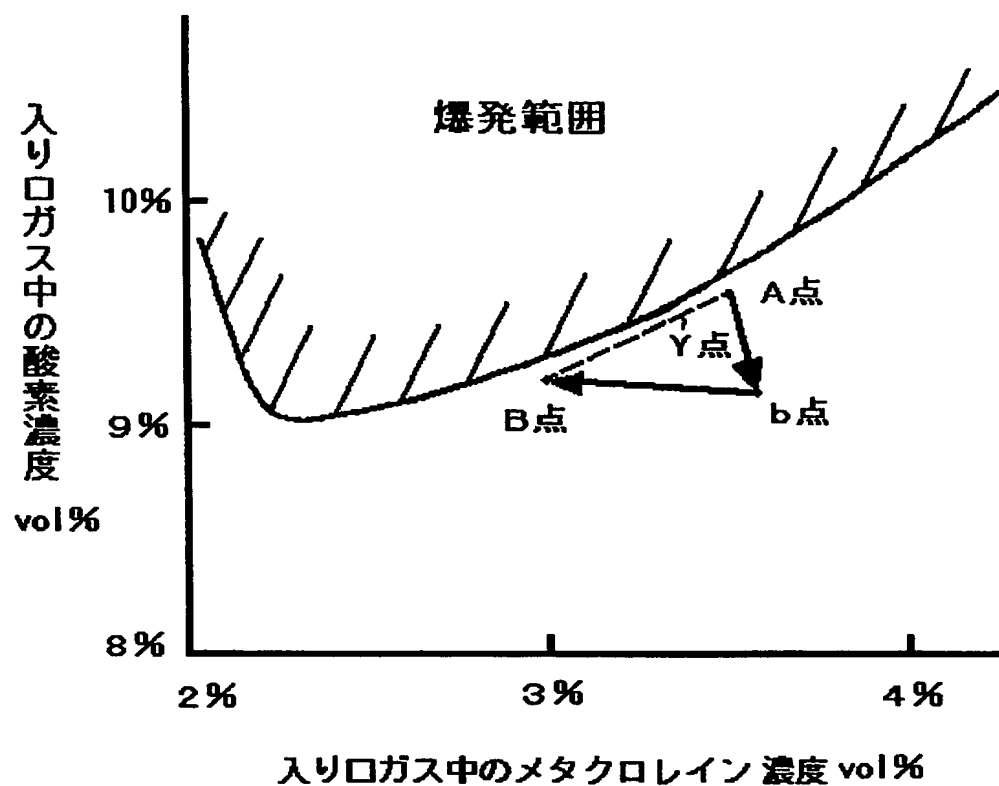
【図 6】



【図 7】



【図8】



## 【書類名】要約書

## 【要約】

【課題】安全且つ製造プロセスの能力を最大限に引き出す様な組成条件の変更を可能とする。

【解決手段】少なくとも被酸化原料と分子状酸素含有ガスとを混合し、接触気相酸化反応器に供給する方法において、接触気相酸化反応器の入り口ガスの組成を、該入り口ガス中の被酸化原料の濃度と酸素の濃度をプロットして表される組成A点〔被酸化原料の濃度 $R(a)$ 、酸素の濃度 $O(a)$ 〕から、組成B点〔 $R(b)$ 、 $O(b)$ 〕に変更する際に〔組成A点および組成B点は爆発範囲外の組成であり、かつ $R(a) \neq R(b)$ 、 $O(a) \neq O(b)$ である。〕、組成A点から組成B点への変更の際の途中の組成が爆発範囲外となるように、被酸化原料の供給量および分子状酸素含有ガスの供給量を調整することを特徴とする接触気相酸化反応の反応ガス供給方法。

【選択図】図1

特願 2 0 0 3 - 2 7 4 1 6 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 6 0 3 5 ]

1. 変更年月日

1 9 9 8 年 4 月 2 3 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区港南一丁目 6 番 4 1 号

氏 名

三菱レイヨン株式会社